



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C09J 4/06, 163/00, 7/02, H01R 4/04, 11/01, H01B 1/20, H01L 21/60</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/46315</p> <p>(43) 国際公開日 2000年8月10日(10.08.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP00/00666</p> <p>(22) 国際出願日 2000年2月8日(08.02.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11/29891 1999年2月8日(08.02.99) JP 特願平11/75574 1999年3月19日(19.03.99) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒163-0449 東京都新宿区西新宿二丁目1番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 湯佐正己(YUSA, Masami)[JP/JP] 柳川俊之(YANAGAWA, Toshiyuki)[JP/JP] 藤縄 貢(FUJINAWA, Tohru)[JP/JP] 〒300-4247 茨城県つくば市和台48番 日立化成工業株式会社 総合研究所内 Ibaraki, (JP) 渡辺伊津夫(WATANABE, Itsuo)[JP/JP] 〒308-8524 茨城県下館市大字五所宮1150番地 日立化成工業株式会社 五所宮事業所内 Ibaraki, (JP)</p>		<p>(74) 代理人 佐野惣一郎(SANO, Souichirou) 〒153-0043 東京都目黒区東山1-16-15 イーストヒル4階 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書 補正書・説明書</p>
<p>(54) Title: ADHESIVE, ELECTRODE-CONNECTING STRUCTURE, AND METHOD OF CONNECTING ELECTRODES</p> <p>(54) 発明の名称 接着剤、電極の接続構造及び電極の接続方法</p> <p>(57) Abstract An adhesive which is for use in electrically connecting electrodes facing each other and comprises: (a) at least one cationically photopolymerizable compound selected among epoxy compounds, vinyl ether compounds, and cyclic ether compounds; (b) a cationic photopolymerization initiator such as an onium salt; (c) at least one radical-photopolymerizable compound selected among acrylic ester compounds, methacrylic ester compounds, and maleimide compounds; and (d) a free-radical photopolymerization initiator such as an organic peroxide.</p>		

(57)要約

相対向する電極を電氣的に接続する接着剤であつて、

(a) エポキシ化合物、ビニルエーテル化合物及び環状エーテル化合物から選ばれる少なくとも1種の光カチオン重合性化合物、

(b) オニウム塩等の光カチオン重合開始剤、

(c) アクリル酸エステル化合物、メタクリル酸エステル化合物及びマレイミド化合物から選ばれる少なくとも1種の光ラジカル重合性化合物、

(d) 有機過酸化物等の光ラジカル重合開始剤を含む接着剤。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	UZ	ウズベキスタン
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	VN	ヴェトナム
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モリタニア	YU	ユーゴスラヴィア
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	ZA	南アフリカ共和国
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	ZW	ジンバブエ
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク		
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール		
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ		
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー		
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明細書

## 接着剤、電極の接続構造及び電極の接続方法

## 5 技術分野

本発明は、相対峙する電極間に介在され、相対向する電極を電氣的に接続する接着剤、電極の接続構造及び電極の接続方法に関する。

## 背景技術

- 10 一般に、この種の接着剤において、異方導電性接着剤は、金属粒子等の導電性粒子を所定量含有したフィルム状の接着剤であり、回路の接続材料として用いられているものがある。この接着剤は、電子部品と電極や回路の間に設け、加圧または加熱加圧を行うことによって、両者の電極同士を電氣的に接続すると共に、隣接する電極間には絶縁性を付与して、電子部品と回路とを接着固定するものである。異方導電性接着剤としては、スチレン系やポリエステル系等の熱可塑性物質や、エポキシ系やシリコーン系等の熱硬化性物質が知られている。これらの物質を含む接着剤を硬化させるには硬化剤が必要であり、さらにその硬化剤には、異方導電性接着剤の保存安定性を高めるために、常温では不活性であり、活性温度以上でのみ反応するという潜在性が伴っていないなければならない。このため接着剤を硬化させるためには、樹脂成分の流動性の向上および硬化反応の促進のための加熱加圧が必要となる。すなわち、接着剤を溶融、流動させ、導電性粒子を変形して回路との接触面積を増大し、かつ回路部材との密着性を高めるために温度や圧力が必要となり、これらの必用な温度や圧力は、接着剤の種類や硬化成分による。
- 15 20

- この他にフィルム状以外の形態を有する異方導電性接着剤としては、光硬化性樹脂を用いたペースト状材料が知られているが、これらの異方導電性接着剤は加圧もしくは加熱加圧によって回路部材を接続し、その後光照射によって接着剤を硬化させるものである。
- 25

これらの従来技術では、接着剤が十分な接着強度を得るためには、170～200℃の加熱温度を必要としていた。

しかしながら、樹脂硬化の際の加熱加圧に伴う回路部材に対する熱や圧力の影響はその大小を問わず存在し、特に熱的な影響に関しては、回路部材自体への影響のみならず、回路部材接続時の影響も大きい。

すなわち、前者の異方導電性接着剤の場合、例えば液晶パネル等の回路部材を接続する際、偏光板等液晶パネル自体に対する影響が懸念され、これによって従来より低温での接続、あるいは従来より短時間での接続が要求されている。

また後者の異方導電性接着剤の場合、加熱加圧時の温度が高い条件で接続を行うと、対向する2つの回路部材の材質が異なりそれぞれの熱膨張係数( $\alpha$ )の差が大きい場合には、回路の位置ずれが発生する可能性が高い。このことは隣接回路間のピッチが狭くなるにつれてさらに発生確率が高くなる。

そこで、本発明の目的は、光照射を併用することによって従来より低温での接続が可能で、回路部材に対する熱的影響を軽減し、かつ接続後における接続部の信頼性に優れる、相対峙する電極同士を電氣的に接続することを可能とする接着剤、電極の接続構造及び電極の接続方法を提供することにある。

#### 発明の開示

第一の本発明は、(a) 光カチオン重合性化合物、(b) 光カチオン重合開始剤、(c) 光ラジカル重合性化合物、(d) 光ラジカル重合開始剤を含むことを特徴とする接着剤である。

また第二の本発明は、(a) 光カチオン重合性化合物および(b) 光カチオン重合開始剤を含む第一層と、(c) 光ラジカル重合性化合物および(d) 光ラジカル重合開始剤を含む第二層を備えた多層構成の接着剤である。

これら第一及び第二の発明にかかる接着剤を対峙する電極間に介在させて、対峙する電極を加熱加圧しつつ同時に光照射を併用して、相対峙する電極同士を電氣的に接続する。本発明にかかる接着剤は、加熱加圧と光照射との併用により加熱温度を小さくでき、従来より低温での接続が可能となる。これにより、回路部材に対する熱的影響を軽減し、かつ接続後における接続部の信頼性に優れる。

(a) 光カチオン重合性化合物として、エポキシ化合物、ビニルエーテル化合物及び環状エーテル化合物から選ばれる少なくとも1種、(c) 光ラジカル重合性化合物

として、アクリル酸エステル化合物、メタクリル酸エステル化合物及びマレイミド化合物から選ばれる少なくとも１種を含有することが硬化性が良好であるので好ましい。

- 5 (b) 光カチオン重合開始剤としてオニウム塩が、光カチオン重合性化合物、特にエポキシ化合物に対する硬化性が高いので好ましく、(d) 光ラジカル重合開始剤として有機過酸化物が、光硬化に加え、熱反応による硬化促進を図るため好ましい。

- それぞれの接着剤成分の含有量としては、(a) 光カチオン重合性化合物の含有量が(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5～95重量部、好ましくは20～80重量部、より好ましくは40～60重量部、(b) 光カチオン重合開始剤の含有量が(a) 光カチオン重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部、(c) 光ラジカル重合性化合物の含有量が(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5～95重量部、好ましくは20～80重量部、より好ましくは40～60重量部、(d) 光ラジカル重合開始剤の含有量が(c) 光ラジカル重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部の範囲内で用いることが好ましい。
- 10 重量部、(b) 光カチオン重合開始剤の含有量が(a) 光カチオン重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部、(c) 光ラジカル重合性化合物の含有量が(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5～95重量部、好ましくは20～80重量部、より好ましくは40～60重量部、(d) 光ラジカル重合開始剤の含有量が(c) 光ラジカル重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部の範囲内で用いることが好ましい。
- 15 重量部に対して0.05～10重量部の範囲内で用いることが好ましい。

光カチオン重合開始剤と光ラジカル重合開始剤との含有量を夫々0.05～10重量部としているのは、夫々0.05未満だと開始剤の量が少なすぎて硬化不良を引き起こすおそれがあり、10重量部を超えると硬化物の物性の低下をまねくおそれがあるからである。

- 20 接着剤中にさらに分子量10000以上の水酸基含有樹脂を含有することができ、フェノキシ樹脂、カルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂、エポキシ基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂が好ましい。さらに接着剤中にアクリルゴムを含有することができる。

- これらは硬化時の応力緩和に優れ、被着体との接着性を向上させ、接続信頼性を向上させる。また、流動性を向上させたり、内部応力の緩和による物性の向上をもたらす。
- 25 上させる。また、流動性を向上させたり、内部応力の緩和による物性の向上をもたらす。

これらの接着剤は剥離性基材上に塗布、乾燥してフィルム状として用いることができる。フィルム状とすることにより、取り扱い性に優れるとともに接続厚みの均一化が図り易い。

上記接着剤には、導電性粒子を含有でき、導電性粒子の含有量を接着剤のマトリクス成分100容量部に対して0.1～30容量部とした異方導電性接着剤とすることができる。導電性粒子を含有することにより、電氣的接続の信頼性が向上する。

5 第二の発明において、第一層及び第二層の層厚みが5～50  $\mu$ mであることが好ましい。

5  $\mu$ mよりも小さいと第一層と第二層に分けた効果を十分に発揮できなく、50  $\mu$ mよりも大きいと接着剤のはみ出し量が多くなり、作業性を低下させるおそれがあり、電極の高さの0.8から1.5倍程度の接着剤厚みが必要だからである。

10 第二の発明にかかる多層構成の接着剤は、第一層と第二層の間に、非重合性成分から成る第三層を備えることができる。

非重合性成分としては、フェノキシ樹脂、ポリビニルアルコール、ポリビニルブチラール、アクリルゴム、ポリウレタンなどのカオチン重合性官能基やラジカル重合性官能基を有しない化合物が挙げられる。

15 また、第三の発明の電極の接続構造は、第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とが、第一の電極と第二の電極を対向して配置されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極の間に、第一または第二の発明にかかる接着剤が介在されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極が電氣的に接続されているものである。

20 第三の発明にかかる電極の接続構造によれば、第一または第二の発明にかかる接着剤を対峙する電極間に介在させて、対峙する電極を加熱加圧しつつ光照射を併用して、相対峙する電極同士を電氣的に接続する。加熱加圧時に光照射を併用することにより、対峙する第一の電極と第二の電極との接続に要する温度を従来より低くすることが可能で、優れた接着強度を得ることができ、良好な電氣的導通を得ることができ、優れた信頼性を有する電極の接続構造を得ることができる。

25 本発明の電極の接続構造は、第一の回路部材と第二の回路部材の少なくとも一方が透光性を有するものが好ましい。外部から回路部材を通して容易に接着剤に光照射できるからである。

本発明の電極の接続構造は、第一の電極を有する第一の回路部材が、ガラス基板に電極を有する配線が形成されたものであり、第二の電極を有する第二の回路部材が、

ポリイミド基板に電極を有する配線が形成されたものであることができる。

5 第四の発明にかかる電極の接続方法は、第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とが、第一の電極と第二の電極を対向して配置されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極の間に第一または第二の発明にか  
5 かる接着剤が介在されており、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電極と第二の電極を電氣的に接続するものである。

第五の発明にかかる電極の接続方法は、第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とを、第二の発明にかかる接着剤を介在させて対向配置し、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電  
10 極と第二の電極を電氣的に接続させる電極の接続方法であって、接着剤における第一層の被着対象が第一回路部材であり、第一回路部材は、ガラス基板に接続端子を有する配線が形成されたものであり、第二層の被着対象が第二回路部材であり、第二回路部材がポリイミド基板に接続端子を有する配線が形成されたものである電極の接続  
方法。

15 第四及び第五の電極の接続方法によれば、接着剤を対向して配置した第一の電極と第二の電極との間に介在させて、対向する電極を加熱加圧しつつ光照射を併用して、相對峙する電極同士を電氣的に接続する。加熱加圧するとき光照射を併用することによって従来より低温での接続が可能で、回路部材に対する熱的影響を軽減し、かつ  
20 接続後における接続部の信頼性に優れる、相對峙する電極同士を電氣的に接続すること  
20 とを可能とする電極の接続方法を得ることができる。更に、第五の電極の接続方法では、第一回路部材がガラス基板であるから、回路部材側から接着剤に照射することができ、外側から容易に光照射が可能である。

25 第四及び第五の電極の接続方法において、一定時間の加熱加圧の開始後、所定間隔経過後に一定時間の光照射を開始し、光照射が行なわれている間は加熱加圧状態が保持される方法が使用される。

加熱加圧時間は、5～30秒が好ましい。5秒より少ないと接着剤の流動性が不十分であり、30秒より多いと作業性が低下するからである。

加熱加圧後の所定間隔の時間は、1～10秒が好ましい。1秒より少ないと電極間の導通が確保される前に接着剤の硬化が始まり導通不良の原因となり、10秒より多

いと光照射に要する時間が短くなり、接着剤の硬化不良を引き起こすからである。

光照射時間は、3～30秒が好ましい。3秒より少ないと接着剤の硬化不良の要因となり、30秒より多いと作業性が低下するからである。

## 5 図面の簡単な説明

図1は、本発明の実施の形態にかかる接着剤を用いて回路基板の電極を接続する状態を模式的に示した断面図である。

図2は、図1に示す回路基板の電極を接続する方法を模式的に示した断面図である。

図3は、他の実施の形態にかかる接着剤を用いて回路基板の電極を接続する状態を模式的に示した断面図である。

図4は、更に他の実施の形態にかかる接着剤を用いて回路基板の電極を接続する状態を模式的に示した断面図である。

## 発明を実施するための最良の形態

15 図1は、本発明の実施の形態にかかる接着剤を用いて回路基板の電極を接続する構造を模式的に示したものであり、第一の電極11を有する第一の回路部材13と第二の電極15を有する第二の回路部材17との間に、本発明にかかる接着剤20が介在されており、この接着剤20により、第一の電極11と第二の電極15とを接着固定して電氣的に接続する。第一の回路部材13は、フレキシブルプリント配線回路（FPC）の基板であり、第一の電極11は、FPC回路である。同様に第二の回路部材17は、ガラス基板であり、第二の電極15は、ガラス基板上に形成されたITOの電極回路である。

25 図2は、第一の電極11と第二の電極15とを接着固定する方法を示しており、加熱加圧ヘッド31により、第一の回路部材13を第二の回路部材17が載置されている透光性のベース33に向けて押圧しており、同時に光源35から接着剤20に光を照射している。尚、光源35からの光は、透光性のベース33及び透光性の第二の回路部材17を透過して接着剤20に照射される。

図3は、第一層21と第二層23との二層構造とした接着剤22を示したものであり、図4は、接着剤22を第一層21と第二層23との間に第三層25を設けた3層



構造とした接着剤 24 を示したものである。

図 1 に示す単層の接着剤 20 は、光カチオン重合性化合物、光カチオン重合開始剤、光ラジカル重合性化合物、光ラジカル重合開始剤を含んでいる。

- 図 3 及び図 4 の多層の接着剤 22、24 は、第一層 21 に光カチオン重合性化合物  
5 および光カチオン重合開始剤を含んでおり、第二層 23 に光ラジカル重合性化合物および光ラジカル重合開始剤を含んでいる。

- 本発明にかかる接着剤 20、22、24 に用いる光カチオン重合性化合物としては、カチオン種によって重合する官能基を有する化合物であり、エポキシ化合物、ビニルエーテル化合物、環状エーテル化合物等が挙げられる。エポキシ化合物としては、1  
10 分子中に 2 個以上のエポキシ基を有する化合物であり、例えば、エピクロルヒドリンとビスフェノール A やビスフェノール F 等から誘導されるビスフェノール型エポキシ樹脂や、ポリグリシジルエーテル、ポリグリシジルエステル、芳香族エポキシ化合物、脂環式エポキシ化合物、ノボラック型エポキシ化合物、グリシジルアミン系エポキシ化合物、グリシジルエステル系エポキシ化合物等が挙げられる。

- 15 ビニルエーテル化合物としては、アルキルビニルエーテル化合物、アルケニルビニルエーテル化合物、アルキニルビニルエーテル化合物、アリールビニルエーテル化合物等が挙げられる。

環状エーテル化合物としては、オキセタン化合物、テトラヒドロフラン化合物、テトラヒドロピラン化合物等が挙げられる。

- 20 本発明に用いる光カチオン重合開始剤としては、芳香族ジアゾニウム塩、スルホニウム塩、ヨードニウム塩、ホスホニウム塩、セレノニウム塩等のオニウム塩や金属アレーン錯体、シラノール／アルミニウム錯体等の錯体化合物、ベンゾイントシレート、  
o-ニトロベンジルトシレート等を用いることができる。また、塩を形成する際の対  
25 アニオンとしてはヘキサフルオロアンチモネート、ヘキサフルオロホスフェート、テトラフルオロボレート、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が用いられる。

本発明に用いる光ラジカル重合性化合物としては、活性ラジカルによって重合する官能基を有する物質であり、アクリル酸エステル化合物、メタクリル酸エステル化合物、マレイミド化合物等が挙げられる。光ラジカル重合性化合物はモノマー、オリゴ

マーいずれの状態で用いることが可能であり、モノマーとオリゴマーを併用することも可能である。

- 5      アクリル酸エステル化合物、メタクリル酸エステル化合物としてはエボキシアクリレートオリゴマー、ウレタンアクリレートオリゴマー、ポリエーテルアクリレートオリゴマー、ポリエステルアクリレートオリゴマー等の光重合性オリゴマー、トリメチロールプロパントリアクリレート、ポリエチレングリコールジアクリレート、ポリアルキレングリコールジアクリレート、ペンタエリスリトールアクリレート、2-シアノエチルアクリレート、シクロヘキシルアクリレート、ジシクロペンテニルアクリレート、ジシクロペンテニロキシエチルアクリレート、2-(2-エトキシエトキシ)エチルアクリレート、2-エトキシエチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、*n*-ヘキシルアクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート、ヒドロキシプロピルアクリレート、イソボルニルアクリレート、イソデシルアクリレート、イソオクチルアクリレート、*n*-ラウリルアクリレート、2-メトキシエチルアクリレート、2-フェノキシエチルアクリレート、テトラヒドロフルフリールアクリレート、  
10      ネオペンチルグリコールジアクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート等の光重合性単官能および多官能アクリレートモノマー等といったアクリル酸エステル等、およびこれらと類似した *t*-ブチルアミノエチルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、ジシクロペンテニロキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、イソボルニルメタクリレート、イソデシルメタクリレート、*n*-ラウリルアクリレート、ステアリルメタクリレート、トリデシルメタクリレート、グリシジルメタクリレート等の光重合性単官能および多官能メタクリレートモノマーといったメタクリル酸エステル等に代表される光重合型の樹脂があり、必要に応じてこれらの樹脂を単独あるいは混合して用いてもよいが、接着剤硬化物の硬化収縮を抑制し、柔軟性を与えるためにはウレタンアクリレートオリゴマーを配合する  
15      のが好ましい。また上述した光重合性オリゴマーは高粘度であるために、粘度調整のために低粘度の光重合性多官能アクリレートモノマー等のモノマーを配合するのが好ましいが、その際には所望の接着剤特性を得るために1種あるいは2種類以上を混合して用いてもよい。

マレイミド化合物としては、分子中にマレイミド基を少なくとも2個以上含有する

もので、例えば、1-メチル-2,4-ビスマレイミドベンゼン、N, N'-m-フェニレンビスマレイミド、N, N'-p-フェニレンビスマレイミド、N, N'-m-トリレンビスマレイミド、N, N'-4,4'-ビフェニレンビスマレイミド、N, N'-4,4'-(3,3'-ジメチル-ビフェニレン)ビスマレイミド、N, N'-4,4'-(3,3'-ジメチルジフェニルメタン)ビスマレイミド、N, N'-4,4'-(3,3'-ジエチルジフェニルメタン)ビスマレイミド、N, N'-4,4'-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N'-4,4'-ジフェニルプロパンビスマレイミド、N, N'-4,4'-ジフェニルエーテルビスマレイミド、N, N'-3,3'-ジフェニルスルホンビスマレイミド、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、2,2-ビス(3-s-ブチル-4-8(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)プロパン、1,1-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)デカン、4,4'-シクロヘキシリデン-ビス(1-(4-マレイミドフェノキシ)-2-シクロヘキシルベンゼン、2,2-ビス(4-(4-マレイミドフェノキシ)フェニル)ヘキサフルオロプロパンなどを挙げることができる。これらは単独でもまた組み合わせても使用できる。

本発明に用いる光ラジカル重合開始剤としては、光照射によって活性ラジカルを発生する化合物を用いることができる。本発明に用いる光ラジカル重合開始剤としてはベンゾインエチルエーテル、イソプロピルベンゾインエーテル等のベンゾインエーテル、ベンジル、ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン等のベンジルケタール、ベンゾフェノン、アセトフェノン等のケトン類およびその誘導体、チオキサントン類、ビスイミダゾール類等があり、これらの光開始剤に必要に応じてアミン類、イオウ化合物、リン化合物等の増感剤を任意の比で添加してもよい。この際、用いる光源の波長や所望の硬化特性等に応じて最適な光開始剤を選択する必要がある。

また、光照射によって活性ラジカルを発生する化合物として有機過酸化物系硬化剤を用いることができる。有機過酸化物としてはジアシルパーオキシサイド、ジアルキルパーオキシサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ハイドロパーオキシサイド、シリルパーオキシサイド等から1種または2種以上を選定できる。これらは回路部材の電極の腐食を抑制するために、有機過酸化物硬化剤中に含有される塩素イオンや有機酸は5000ppm以下であることが好ましく、さ

らに加熱分解後に発生する有機酸が少ないものがより好ましい。

有機過酸化物の種類は高反応性と保存安定性の点から、半減期が10時間となる分解温度が40℃以上かつ半減期が1分となる分解温度が180℃以下であるものが好ましく、低温硬化を行う場合の樹脂流動の妨げを抑制するためには半減期が10時

5 間となる分解温度が70℃以上であることがより好ましい。

ジアシルパーオキサイド類としては、イソブチルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、ステアロイルパーオキサイド、スクシニックパーオキサイド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキサイド等がある。ジアルキルパーオキサイド類では、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ ビス(t-ブチルパーオキシ)ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、t-ブチルクミルパーオキサイド等がある。

15 パーオキシジカーボネート類としては、ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス(4-t-ブチルシクロヘキシル)パーオキシジカーボネート、ジ-2-エトキシメトキシパーオキシジカーボネート、ジ(2-エチルヘキシルパーオキシ)ジカーボネート、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート、ジ(3-メチル-3-メトキシブチルパーオキシ)ジカーボネート等がある。

20 パーオキシエステル類としては、クミルパーオキシネオデカノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシノエデカノエート、t-ヘキシルパーオキシネオデカノエート、t-ブチルパーオキシピバレート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(2-エチルヘキサノイルパーオキシ)ヘキサン、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、t-ブチルパーオキシイソブチレート、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、t-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、t-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチ

ルヘキサノネート、*t*-ブチルパーオキシラウレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(m-トルオイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキシルモノカーボネート、*t*-ヘキシルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシアセテート等がある。

- 5 パーオキシケタール類では、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)シクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-(*t*-ブチルパーオキシ)シクロドデカン、2, 2-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)デカン等がある。

- 10 ハイドロパーオキサイド類では、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド等がある。

- シリルパーオキサイド類としては*t*-ブチルトリメチルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジメチルシリルパーオキサイド、*t*-ブチルトリビニルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジビニルシリルパーオキサイド、トリス(*t*-ブチル)ビニルシリルパーオキサイド、*t*-ブチルトリアリルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジアリルシリルパーオキサイド、トリス(*t*-ブチル)アリルシリルパーオキサイド等がある。

- これらの遊離ラジカル発生剤は単独または混合して使用することができ、分解促進剤、抑制剤等を混合して用いてもよい。また、これらのラジカル発生剤をポリウレタン系、ポリエステル系の高分子物質等で被覆してマイクロカプセル化したものは、可使時間が延長されるために好ましい。

- また、有機過酸化物の他に前述のベンゾインエチルエーテル、イソプロピルベンゾインエーテル等のベンゾインエーテル、ベンジル、ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン等のベンジルケタール、ベンゾフェノン、アセトフェノン等のケトン類およびその誘導体、チオキサントン類、ビスイミダゾール類等を適宜混合して用いることもできる。さらに、これらの光開始剤に必要な応じてアミン類、イオウ化合物、リン化合物等の増感剤を任意の比で添加してもよい。

増感剤としては、脂肪族アミン、芳香族基を含むアミン、ピペリジンのように窒素が環系の一部をなしているもの、*o*-トリルチオ尿素、ナトリウムジエチルジチオホ

スフェート、芳香族スルフィン酸の可溶性塩、N, N' -ジメチル-p-アミノベンゾニトリル、N, N' -ジエチル-p-アミノベンゾニトリル、N, N' -ジ(β-シアノエチル)-p-アミノベンゾニトリル、N, N' -ジ(β-クロロエチル)-p-アミノベンゾニトリル、トリ-n-ブチルホスフィン等がある。

- 5 また、プロピオフェノン、アセトフェノン、キサントン、4-メチルアセトフェノン、ベンゾフェノン、フルオレン、トリフェニレン、ビフェニル、チオキサントン、アントラキノン、4, 4' -ビス(ジメチルアミノ)ベンゾフェノン、4, 4' -ビス(ジエチルアミノ)ベンゾフェノン、フェナントレン、ナフタレン、4-フェニルアセトフェノン、4-フェニルベンゾフェノン、1-ヨードナフタレン、2-ヨードナフタレン、アセナフテン、2-ナフトニトリル、1-ナフトニトリル、クリセン、ベンジル、フルオランテン、ピレン、1, 2-ベンゾアントラセン、アクリジン、アントラセン、ペリレン、テトラセン、2-メトキシナフタレン等の非色素系増感剤、チオニン、メチレンブルー、ルミフラビン、リボフラビン、ルミクロム、クマリン、ソラレン、8-メトキシソラレン、6-メチルクマリン、5-メトキシソラレン、5-ヒドロキシソラレン、クマリルピロン、アクリジンオレンジ、アクリフラビン、プロフラビン、フルオレセイン、エオシンY、エオシンB、エリトロシン、ローズベンガル等の色素系増感剤を用いることができる。
- 10
- 15

- 本発明に使用できる水酸基含有樹脂として、含有した場合の取扱い性がよく硬化時の応力緩和に優れるものが好ましく、水酸基等の官能基を有する場合には被着体との
- 20 接着性が向上するためより好ましい。各ポリマーをラジカル重合性の官能基で変性したものがより好ましい。これらポリマーの分子量は10000以上が好ましいが100000以上になると(a)光カチオン重合性化合物と(c)光ラジカル重合性化合物との混合性が悪くなる。また、水酸基含有樹脂とポリスチレン、ポリエチレン、ポリビニルブチラール、ポリビニルホルマール、ポリイミド、ポリアミド、ポリエ
- 25 テル、ポリ塩化ビニル、ポリフェニレンオキサイド、尿素樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、キシレン樹脂、エポキシ樹脂、ポリイソシアネート樹脂を1種あるいは2種類以上を混合して用いることができる。これら分子量10000以上の水酸基含有樹脂は、カルボキシル基含有エラストマー、エポキシ基含有エラストマー、ラジカル重合性の官能基によって変性されていてもよい。またラジカル重合性の官能基で変

性したものは耐熱性が向上するため好ましい。フェノキシ樹脂は、カルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂やエポキシ基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂を使用することができる。

5 本発明に使用できるアクリルゴムとしては、アクリル酸、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステルまたはアクリロニトリルのうち少なくともひとつをモノマー成分とした重合体または共重合体があげられ、中でもグリシジルエーテル基を含有するグリシジルアクリレートやグリシジルメタクリレートを含む共重合体系アクリルゴムが好適に用いられる。

10 また、被着体が無機物の場合にはシランカップリング剤を接着剤樹脂に混合して被着体との接着強度を高めることが可能である。シランカップリング剤としてはビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリスー（ $\beta$ -メトキシエトキシ）シラン、 $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、イソシアン酸プロピルトリエトキシシラン等があるが、  
15 (a) 光カチオン重合性化合物又は (c) 光ラジカル重合性化合物との反応性を高めるには $\gamma$ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシランを用いるのがより好ましい。

硬化に用いる光は、一般的に広く使用されている紫外線を用いることができ、水銀ランプ、メタルハライドランプ、無電極ランプ等で発生させることができる。また、  
20 硬化反応としてラジカル反応を用いた場合、酸素が反応禁止剤として作用するので、光照射の雰囲気中の酸素量は光硬化性樹脂の硬化に影響を与える。これは光硬化性樹脂、光開始剤、増感剤等の種類や濃度にも大きく左右されるので、個々の配合系で詳細に検討する必要がある。

本発明において、回路部材としては半導体チップ、抵抗体チップ、コンデンサチップ等のチップ部品、プリント基板等の基板、ポリイミドやポリエステルを基材とした  
25 フレキシブル配線板、液晶パネル等ガラス上に酸化インジウムスズ（ITO）やクロム、アルミニウム等で配線した透明電極等が用いられる。

これらの回路部材には端子（電極）が通常は多数（場合によっては単数でも良い）設けられており、少なくとも一方が透光性を有する前記回路部材の少なくとも1組を、

それらの回路部材に設けられた端子の少なくとも1部を対向配置し、対向配置した端子間に接着剤を介在させ、加熱加圧および光照射して対向配置した端子同士を電氣的に接続して接続体とする。この時、透光性を有する回路部材の厚みは、1.2 mm以下が透光性の面で好ましい。

- 5      また、形態をフィルム状とすることで、従来のペースト状回路接続材料に比べて取扱い性が優れている点や接続厚みの均一化が図れる点等で有利である。さらに、回路部材との密着性を高めるために、硬化反応がほとんど進行せず樹脂が流動する程度の加熱を行う場合、接続材料の加熱を行って端子ー導電性粒子ー端子間の導通を確保した後、冷却工程を導入することによって接続材料の熔融粘度を再上昇させることが可能であり、これによって加熱ー冷却のみによる導電性粒子の圧接状態を維持し樹脂の固定が図れる。

本発明の接着剤は導電性粒子がなくても、接続時に相対向する回路電極の直接接触により接続が得られるが、導電粒子を含有した場合、より安定した接続が得られる。

- 15      導電性粒子としては、Au、Ag、Ni、Cu、はんだ等の金属粒子やカーボン等があり、十分な保存安定性を得るためには、表層はNi、Cuなどの遷移金属類ではなくAu、Ag、白金族の貴金属類が好ましくAuがより好ましい。また、Niなどの遷移金属類の表面をAu等の貴金属類で被覆したものでもよい。また、非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等に前記した導通層を被覆等により形成し最外層を貴金属類で被覆したものでもよい。プラスチックを核とした場合や熱熔融金属粒子  
20      の場合、加熱加圧により変形性を有するので接続時に電極との接触面積が増加し信頼性が向上するので好ましい。貴金属類の被覆層の厚みは良好な抵抗を得るためには、100オングストローム以上が好ましい。しかし、Ni等の遷移金属の上に貴金属類の層を設ける場合では、貴金属類層の欠損や導電粒子の混合分散時に生じる貴金属類層の欠損等により生じる遷移金属による酸化還元作用で遊離ラジカルが発生し保存  
25      性の低下を引き起こすため、300オングストローム以上が好ましい。導電性粒子は、接着剤樹脂成分100部（体積）に対して0.1～30部（体積）の範囲で用途により使い分ける。過剰な導電性粒子による隣接回路の短絡等を防止するためには0.1～10部（体積）とするのがより好ましい。

本発明には用途に応じてカップリング剤、無機充填剤、有機充填剤、白色顔料、重



合抑制剤、増感剤およびその組合せから選択される添加物を含有してもよい。その添加量としては接着剤樹脂成分100重量部に対して1～100重量部が好ましいが、添加物の種類や性質が得られる回路板の信頼性に悪影響を及ぼす可能性がない、あるいは著しく低くなるような範囲内で用いる必要がある。

- 5 以下に、本発明を実施例に基づいて詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

(実施例1)

- フェノキシ樹脂（ユニオンカーバイド社製、商品名PKHC、平均分子量45,000）40gを、重量比でトルエン（沸点110.6℃、SP値8.90）／酢酸エチル（沸点77.1℃、SP値9.10）＝50／50の混合溶剤60gに溶解して、固形分40%の溶液とした。光カチオン重合性化合物は、ビスフェノール型液状エポキシ樹脂（ビスフェノールA型エポキシ樹脂、油化シェルエポキシ株式会社製、商品名エピコート828、エポキシ当量184）を用いた。光ラジカル重合性化合物としてはエポキシアクリレートオリゴマー（新中村化学工業株式会社製、商品名NKオリゴEA-1020）を用いた。光カチオン重合開始剤としてはトリアリールスルホニウムのヘキサフルオロリン塩混合物（ユニオンカーバイド社製、商品名サイラキュアUVI-6990）を用いた。光ラジカル重合開始剤としてはジクミルパーオキサイド（日本油脂株式会社製、商品名パークミルD）を用いた。またポリスチレンを核とする粒子の表面に、厚み0.2μmのニッケル層を設け、このニッケル層の外側に、厚み0.02μmの金層を設け、平均粒径5μm、比重2.5の導電性粒子を作製した。
- 10  
15  
20

- 固形重量比でフェノキシ樹脂50、光カチオン重合性化合物25、光ラジカル重合性化合物25、光カチオン重合開始剤2.5、光ラジカル重合開始剤2.5となるように配合し、さらに導電性粒子を3体積%配合分散させ、厚み80μmのフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃、10分の熱風乾燥によって接着剤層の厚みが20μmのフィルム状接着剤20（図1参照）を得た。
- 25

上記によって得たフィルム状接着剤20を用いて、ライン幅50μm、ピッチ100μm、厚み18μmの銅回路（電極）11を500本有するフレキシブル回路板（FPC、絶縁基板：ポリイミドフィルム 厚み：125μm）13と、0.2μmの酸

化インジウム（ITO）の薄層15を形成したガラス（厚み1.1mm、表面抵抗20Ω）17とを、紫外線照射併用型熱圧着装置（加熱方式：コンスタントヒート型、東レエンジニアリング株式会社製）31を用いて130℃、2MPaで20秒間の加熱加圧およびITOガラス側からの紫外線照射を同時に行って幅2mmにわたり接続し、時間経過後圧力開放して、接続体を作製した。光源35から接着剤20に照射される紫外線照射量は2.0J/cm<sup>2</sup>とした。この時、あらかじめITOガラス上に、フィルム状接着剤20の接着面を貼り付けた後、70℃、0.5MPaで5秒間加熱加圧して仮接続し、その後フッ素樹脂フィルムを剥離してもう一方の被着体であるFPCと接続した。また20秒間の接続の際、加熱加圧のみを開始して3秒経過した後17秒間の紫外線照射を開始し、加熱加圧20秒後に2工程が同時に終了するようにした。

#### （実施例2）

実施例1で使用したフィルム状接着剤の光カチオン重合性化合物を、脂環式液状エポキシ樹脂（3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、ダイセル化学工業株式会社製、商品名セロキサイド2021、エポキシ当量128～140）に代えた他は、実施例1と同様にして接続体を作製した。

#### （実施例3）

実施例1で使用したフィルム状接着剤の光ラジカル重合性化合物を、ウレタンアクリレートオリゴマー（新中村化学工業株式会社製、商品名NKオリゴUA-512）に代えた他は、実施例1と同様にして接続体を作製した。

#### （実施例4）

実施例1で使用したフィルム状接着剤の光ラジカル重合開始剤を、ベンゾフェノン誘導体（3,3',4,4'-テトラ（t-ブチルパーオキシカルボニル）ベンゾフェノン、日本油脂株式会社製、商品名BTB）に代えた他は、実施例1と同様にして接続体を作製した。

#### （実施例5）

実施例1で使用したフィルム状接着剤の導電性粒子を、平均粒径5μmのニッケル粒子（大同特殊鋼株式会社製、商品名DSP3101、比重8.5）に代えた他は、

実施例 1 と同様にして接続体を作製した。

(実施例 6)

フェノキシ樹脂 (ユニオンカーバイド社製、商品名 PKHC、平均分子量 45,000) 40 g を、重量比でトルエン (沸点 110.6℃、SP 値 8.90) / 酢酸エチル (沸点 77.1℃、SP 値 9.10) = 50 / 50 の混合溶剤 60 g に溶解して、固形分 40% の溶液とした。光カチオン重合性化合物は、ビスフェノール型液状エポキシ樹脂 (ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、油化シェルエポキシ株式会社製、商品名 エピコート 828、エポキシ当量 184) を用いた。光カチオン重合開始剤としてはトリアリールスルホニウムのヘキサフルオロリン塩混合物 (ユニオンカーバイド社製、商品名 サイラキュア UVI-6990) を用いた。またポリスチレンを核とする粒子の表面に、厚み 0.2  $\mu\text{m}$  のニッケル層を設け、このニッケル層の外側に、厚み 0.02  $\mu\text{m}$  の金層を設け、平均粒径 5  $\mu\text{m}$ 、比重 2.5 の導電性粒子を作製した。

固形重量比でフェノキシ樹脂 50、光カチオン重合性化合物 50、光カチオン重合開始剤 5 となるように配合し、さらに導電性粒子を 1.5 体積% 配合分散させ、厚み 80  $\mu\text{m}$  のフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃、10 分の熱風乾燥によって接着剤層の厚みが 10  $\mu\text{m}$  のフィルム状接着剤 21 (図 3 参照) を得た。

光ラジカル重合性化合物としてはエポキシアクリレートオリゴマー (新中村化学工業株式会社製、商品名 NK オリゴ EA-1020) を用いた。光ラジカル重合開始剤としてはジクミルパーオキサイド (日本油脂株式会社製、商品名 パークミル D) を用いた。

固形重量比で前述のフェノキシ樹脂 50、光ラジカル重合性化合物 50、光ラジカル重合開始剤 5 となるように配合し、さらに前述の導電性粒子を 1.5 体積% 配合分散させ、厚み 80  $\mu\text{m}$  のフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃、10 分の熱風乾燥によって接着剤層の厚みが 10  $\mu\text{m}$  のフィルム状接着剤 23 (図 3 参照) を得た。

フィルム状接着剤 21 とフィルム状接着剤 23 をロールラミネーターを用いて貼り合わせ、接着剤層の厚みが 20  $\mu\text{m}$  の図 3 に示すような 2 層構成のフィルム状接着剤を得た。

上記製法によって得たフィルム状接着剤を用いて、ライン幅 $50\mu\text{m}$ 、ピッチ $100\mu\text{m}$ 、厚み $18\mu\text{m}$ の銅回路を $500$ 本有するフレキシブル回路板（FPC）と、 $0.2\mu\text{m}$ の酸化インジウム（ITO）の薄層を形成したガラス（厚み $1.1\text{mm}$ 、表面抵抗 $20\Omega$ ）とを、紫外線照射併用型熱圧着装置（加熱方式：コンスタントヒート型、東レエンジニアリング株式会社製）を用いて $130^\circ\text{C}$ 、 $2\text{MPa}$ で $20$ 秒間の加熱加圧およびITOガラス側からの紫外線照射を同時に行って幅 $2\text{mm}$ にわたり接続し、時間経過後圧力開放して、接続体を作製した。接着剤に照射される紫外線照射量は $2.0\text{J}/\text{cm}^2$ とした。この時、あらかじめITOガラス上に、フィルム状回路接続材料の接着面を貼り付けた後、 $70^\circ\text{C}$ 、 $0.5\text{MPa}$ で $5$ 秒間加熱加圧して仮接続し、その後、フッ素樹脂フィルムを剥離してもう一方の被着体であるFPCと接続した。また $20$ 秒間の接続の際、加熱加圧のみを開始して $3$ 秒経過した後 $17$ 秒間の紫外線照射を開始し、加熱加圧 $20$ 秒後に $2$ 工程が同時に終了するようにした。

（実施例7）

実施例6で使用したフィルム状接着剤21の光カチオン重合性化合物を、脂環式液状エポキシ樹脂（3，4-エポキシシクロヘキシルメチル-3，4-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート、ダイセル化学工業株式会社製、商品名セロキサイド2021、エポキシ当量 $128\sim 140$ ）に代えた他は、実施例6と同様にして接続体を作製した。

（実施例8）

実施例6で使用したフィルム状接着剤23の光ラジカル重合性化合物を、ウレタンアクリレートオリゴマー（新中村化学工業株式会社製、商品名NKオリゴUA-512）に代えた他は、実施例6と同様にして接続体を作製した。

（実施例9）

実施例6で使用したフィルム状接着剤23の光ラジカル重合開始剤を、ベンゾフェノン誘導体（3，3'，4，4'-テトラ（*t*-ブチルパーオキシカルボニル）ベンゾフェノン、日本油脂株式会社製、商品名BTB）に代えた他は、実施例6と同様にして接続体を作製した。

（実施例10）

実施例6で使用したフィルム状接着剤の導電性粒子を、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のニッケル

粒子（大同特殊鋼株式会社製、商品名DSP3101、比重8.5）に代えた他は、実施例6と同様にして接続体を作製した。

（実施例11）

5 実施例1で使用したフィルム状接着剤のフェノキシ樹脂を、カルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂に代えた他は、実施例1と同様にして接続体を作製した。

カルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂は以下の方法によって得た。

10 窒素導入管、温度計、冷却管及びメカニカルスターラーを取り付けた1リットルの四つ口フラスコに、フェノキシ樹脂溶液YPB-40AM40（水酸基当量349g/当量、東都化成株式会社製、臭素化物）をメタノール中に注ぎ再沈精製して得たフェノキシ樹脂242.29gをN、N'-ジメチルアセトアミド565.33gに溶解した溶液、及び末端カルボキシル基含有ブタジエン-アクリロニトリル共重合体（Hycar CTBNX1009-SP、宇部興産株式会社製）50.88gを入れ  
15 攪拌混合しながら十分に窒素置換した。

次に窒素雰囲気下で攪拌混合し、温度を徐々に上げながら溶剤が還流する状態で、8.5時間加熱して、目的のカルボキシル基含有エラストマー変性フェノキシ樹脂のN、N'-ジメチルアセトアミド溶液を得た。

20 得られた溶液は透明であり、溶液粘度は約1000cPであった。反応溶液の一部を大量のメタノール中に注いで固形樹脂を析出させ、メタノール洗浄、減圧乾燥した。

得られたエラストマー変性フェノキシ樹脂のポリスチレン換算重量平均分子量を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（条件：カラム：TSK gel G5000HXL+TSK gel G2000HXL（東ソー株式会社商品名）溶離液：テトラヒドロフラン、試料濃度0.5重量%）により測定したところ、40,000であった。なお、YPB-40AM40のポリスチレン換算重量平均分子量は30,000である。

（実施例12）

実施例1で使用したフィルム状接着剤のフェノキシ樹脂を、エポキシ基含有のエラ

ストマーで変性されたフェノキシ樹脂に代えた他は、実施例 1 と同様にして接続体を作製した。

エポキシ基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂は、実施例 11 の末端カルボキシル基含有ブタジエン-アクリロニトリル共重合体の代わりに、末端エポキシ基含有ブタジエン-アクリロニトリル共重合体 (Hycar ETBN 1300 × 40、宇部興産株式会社製) を用いた以外実施例 11 と同様にした。

(実施例 13)

実施例 1 で使用したフィルム状接着剤のフェノキシ樹脂 (固形重量比 50) を、固形重量比でフェノキシ樹脂 40、アクリルゴム 10 の混合物とした他は実施例 1 と同様にして接続体を作製した。

アクリルゴムはブチルアクリレート (40 部)、エチルアクリレート (30 部)、アクリロニトリル (30 部)、及びグリシジルメタクリレート (3 部) を常法により共重合して作製した (重量平均分子量: 850, 000)。この固形分 150 g を酢酸エチル 850 g に溶解し、15% 溶液を得た。

15 (比較例 1)

フェノキシ樹脂 (ユニオンカーバイド社製、商品名 PKHC、平均分子量 45, 000) 40 g を、重量比でトルエン (沸点 110.6°C、SP 値 8.90) / 酢酸エチル (沸点 77.1°C、SP 値 9.10) = 50 / 50 の混合溶剤 60 g に溶解して、固形分 40% の溶液とした。光カチオン重合性化合物は、ビスフェノール型液状エポキシ樹脂 (ビスフェノール A 型エポキシ樹脂、油化シェルエポキシ株式会社製、商品名 エピコート 828、エポキシ当量 184) を用いた。光カチオン重合開始剤としてはトリアリールスルホニウムのヘキサフルオロリン塩混合物 (ユニオンカーバイド社製、商品名 サイラキュア UVI-6990) を用いた。またポリスチレンを核とする粒子の表面に、厚み 0.2 μm のニッケル層を設け、このニッケル層の外側に、厚み 0.02 μm の金層を設け、平均粒径 5 μm、比重 2.5 の導電性粒子を作製した。

固形重量比でフェノキシ樹脂 50、光カチオン重合性化合物 50、光カチオン重合開始剤 5 となるように配合し、さらに導電性粒子を 3 体積% 配合分散させ、厚み 80 μm のフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70°C、10 分の熱風乾燥によって接着剤層の厚みが 20 μm のフィルム状接着剤を得た。

上記によって得たフィルム状接着剤を用いて、ライン幅  $50\ \mu\text{m}$ 、ピッチ  $100\ \mu\text{m}$ 、厚み  $18\ \mu\text{m}$  の銅回路を  $500$  本有するフレキシブル回路板 (FPC 絶縁基板: ポリイミドフィルム 厚み:  $125\ \mu\text{m}$ ) と、 $0.2\ \mu\text{m}$  の酸化インジウム (ITO) の薄層を形成したガラス (厚み  $1.1\ \text{mm}$ 、表面抵抗  $20\ \Omega$ ) とを、紫外線照射併用型熱圧着装置 (加熱方式: コンスタントヒート型、東レエンジニアリング株式会社製) を用いて  $130^\circ\text{C}$ 、 $2\ \text{MPa}$  で  $20$  秒間の加熱加圧および ITO ガラス側からの紫外線照射を同時に行って幅  $2\ \text{mm}$  にわたり接続し、時間経過後圧力開放して、接続体を作製した。接着剤に照射される紫外線照射量は  $2.0\ \text{J}/\text{cm}^2$  とした。この時、あらかじめ ITO ガラス上に、フィルム状接着剤の接着面を貼り付けた後、 $70^\circ\text{C}$ 、 $0.5\ \text{MPa}$  で  $5$  秒間加熱加圧して仮接続し、その後、フッ素樹脂フィルムを剥離してもう一方の被着体である FPC と接続した。また  $20$  秒間の接続の際、加熱加圧のみを開始して  $3$  秒経過した後  $17$  秒間の紫外線照射を開始し、加熱加圧  $20$  秒後に  $2$  工程が同時に終了するようにした。

(比較例 2)

フェノキシ樹脂 (ユニオンカーバイド社製、商品名 PKHC、平均分子量  $45,000$ )  $40\ \text{g}$  を、重量比でトルエン (沸点  $110.6^\circ\text{C}$ 、SP 値  $8.90$ ) / 酢酸エチル (沸点  $77.1^\circ\text{C}$ 、SP 値  $9.10$ ) =  $50/50$  の混合溶剤  $60\ \text{g}$  に溶解して、固形分  $40\%$  の溶液とした。光ラジカル重合性化合物としてはエポキシアクリレートオリゴマー (新中村化学工業株式会社製、商品名 NKオリゴEA-1020) を用いた。光ラジカル重合開始剤としてはジクミルパーオキサイド (日本油脂株式会社製、商品名 パークミル D) を用いた。またポリスチレンを核とする粒子の表面に、厚み  $0.2\ \mu\text{m}$  のニッケル層を設け、このニッケル層の外側に、厚み  $0.02\ \mu\text{m}$  の金層を設け、平均粒径  $5\ \mu\text{m}$ 、比重  $2.5$  の導電性粒子を作製した。

固形重量比でフェノキシ樹脂  $50$ 、光ラジカル重合性化合物  $50$ 、光ラジカル重合開始剤  $5$  となるように配合し、さらに導電性粒子を  $3$  体積% 配合分散させ、厚み  $80\ \mu\text{m}$  のフッ素樹脂フィルムに塗工装置を用いて塗布し、 $70^\circ\text{C}$ 、 $10$  分の熱風乾燥によって接着剤層の厚みが  $20\ \mu\text{m}$  のフィルム状回路接続材料を得た。

上記製法によって得たフィルム状回路接続材料を用いて、ライン幅  $50\ \mu\text{m}$ 、ピッチ  $100\ \mu\text{m}$ 、厚み  $18\ \mu\text{m}$  の銅回路を  $500$  本有するフレキシブル回路板 (FPC)

と、 $0.2\ \mu\text{m}$ の酸化インジウム（ITO）の薄層を形成したガラス（厚み $1.1\ \text{mm}$ 、表面抵抗 $20\ \Omega$ ）とを、紫外線照射併用型熱圧着装置（加熱方式：コンスタントヒート型、東レエンジニアリング株式会社製）を用いて $130^\circ\text{C}$ 、 $2\ \text{MPa}$ で20秒間の加熱加圧およびITOガラス側からの紫外線照射を同時に行って幅 $2\ \text{mm}$ にわたり接続し、時間経過後圧力開放して、接続体を作製した。接着剤に照射される紫外線照射量は $2.0\ \text{J}/\text{cm}^2$ とした。この時、あらかじめITOガラス上に、フィルム状回路接続材料の接着面を貼り付けた後、 $70^\circ\text{C}$ 、 $0.5\ \text{MPa}$ で5秒間加熱加圧して仮接続し、その後、フッ素樹脂フィルムを剥離してもう一方の被着体であるFPCと接続した。また20秒間の接続の際、加熱加圧のみを開始して3秒経過した後17秒間の紫外線照射を開始し、加熱加圧20秒後に2工程が同時に終了するようにした。

実施例1～13、比較例1～2で得た接続体について初期抵抗、接着性について評価した。初期抵抗については、回路部材の接続後、上記接続部を含むFPCの隣接回路間の抵抗値を、マルチメータで測定した。測定電流は $1\ \text{mA}$ とし、抵抗値は隣接回路間の抵抗 $150$ 点の平均で示した。

FPCならびにITOガラスに対する接着性については、接着強度をJIS-Z0237に準じて90度剥離法で測定し評価した。測定装置は東洋ボールドウィン株式会社製テンシロンUTM-4（剥離速度 $50\ \text{mm}/\text{min}$ 、 $25^\circ\text{C}$ ）を使用した。

その結果、実施例1～13、比較例1、2で得た接続体については、初期抵抗がいずれも $1\sim2\ \Omega$ となった。

実施例1～13及び比較例1、2では、各接着時の加熱温度を $130^\circ\text{C}$ とし、従来接着に必用としていた温度 $170^\circ\text{C}$ より低い温度でおこなったが、このように、低い温度で接着した各実施例1～10及び比較例1、2における接着強度を測定したので、その結果を下記表1に示す。

表1から明らかなように、実施例1～13で得た接続体については、どの被着体に対しても $700\sim1000\ \text{N}/\text{m}$ と高い値が得られ、良好な接続状態の確保が可能となった。

これに対して、比較例1、2は、いずれも $530\ \text{N}/\text{m}$ 以下で剥離が生じ、接続強度が実施例1～13よりも劣っていた。



- また、実施例 1 ～ 13 では、被着体に対する接着強度の選択性はほとんどなかったが、光カチオン重合性化合物および光カチオン重合開始剤から成る接着剤を用いている比較例 1、そして光ラジカル重合性化合物および光ラジカル重合開始剤から成る接着剤を用いている比較例 2 の場合、一方の被着体に対する接着強度は高く、他方の被着体に対しては接着強度が低くなり、被着体に対する接着強度の選択性を示した。

表 1

接着強度 N/m		
実施例 1	700	接着剤層で剥離
実施例 2	790	接着剤層で剥離
実施例 3	820	接着剤層で剥離
実施例 4	840	接着剤層で剥離
実施例 5	800	接着剤層で剥離
実施例 6	760	接着剤層で剥離
実施例 7	810	接着剤層で剥離
実施例 8	860	接着剤層で剥離
実施例 9	820	接着剤層で剥離
実施例 10	780	接着剤層で剥離
実施例 11	700	接着剤層で剥離
実施例 12	720	接着剤層で剥離
実施例 13	720	接着剤層で剥離
比較例 1	530	FPC/接着剤層界面で剥離
比較例 2	310	ITO/接着剤層界面で剥離

## 10 産業上の利用可能性

以上のように、本発明は、回路基板における対峙する電極を電氣的に接続するのに適した接着剤、この接着剤を用いた電極の接続構造及び電極の接続方法として用いられる。

## 請求の範囲

1. (a) 光カチオン重合性化合物、(b) 光カチオン重合開始剤、(c) 光ラジカル重合性化合物、(d) 光ラジカル重合開始剤を含む接着剤。
- 5 2. (a) 光カチオン重合性化合物および(b) 光カチオン重合開始剤を含む第一層と、(c) 光ラジカル重合性化合物および(d) 光ラジカル重合開始剤を含む第二層を備えた接着剤。
3. 第一層及び第二層の層厚みが5～50  $\mu\text{m}$ である請求項2項に記載の接着剤。
4. 第一層と第二層の間に、非重合性成分から成る第三層を備えた請求項2または
- 10 3項に記載の接着剤。
5. (a) 光カチオン重合性化合物がエポキシ化合物、ビニルエーテル化合物及び環状エーテル化合物から選ばれる少なくとも1種、  
(c) 光ラジカル重合性化合物がアクリル酸エステル化合物、メタクリル酸エステル化合物及びマレイミド化合物から選ばれる少なくとも1種である請求項1～4のい
- 15 ずれか一項に記載の接着剤。
6. (b) 光カチオン重合開始剤がオニウム塩である請求項1～5のいずれか一項に記載の接着剤。
7. (d) 光ラジカル重合開始剤が有機過酸化物である請求項1～5のいずれか一項に記載の接着剤。
- 20 8. (a) 光カチオン重合性化合物の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5～95重量部、  
(b) 光カチオン重合開始剤の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部、  
(c) 光ラジカル重合性化合物の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物と(c)
- 25 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5～95重量部、  
(d) 光ラジカル重合開始剤の含有量が、(c) 光ラジカル重合性化合物100重量部に対して0.05～10重量部である請求項1～7のいずれか一項に項記載の接着剤。
9. 接着剤中に分子量10000以上の水酸基含有樹脂を含有する請求項1～8の

いずれか一項に記載の接着剤。

10. 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がフェノキシ樹脂である請求項9記載の接着剤。

5 11. 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がカルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂であることを特徴とする請求項10記載の接着剤。

12. 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がエポキシ基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂である請求項10記載の接着剤。

13. 接着剤中にアクリルゴムを含有する請求項1～12のいずれか一項に記載の接着剤。

10 14. 形態がフィルム状である請求項1～13のいずれか一項に記載の接着剤。

15. 接着剤中に導電性粒子を含む請求項1～14のいずれか一項に記載の接着剤。

16. 接着剤のマトリクス樹脂成分100容量部に対して導電性粒子0.1～30容量部を含み異方導電性を有する請求項1～15のいずれか一項に記載の接着剤。

15 17. 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とが、第一の電極と第二の電極を対向して配置されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極の間に、請求項1～16のいずれか一項に記載の接着剤が介在されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極が電氣的に接続されている電極の接続構造。

20 18. 第一の回路部材と第二の回路部材の少なくとも一方が透光性である請求項17記載の電極の接続構造。

19. 第一の電極を有する第一の回路部材がガラス基板に電極を有する配線が形成されたものであり、第二の電極を有する第二の回路部材がポリイミド基板に電極を有する配線が形成されたものである請求項18記載の電極の接続構造。

25 20. 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とを、請求項1～16項のいずれか一項に記載の接着剤を介在させて対向配置し、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電極と第二の電極を電氣的に接続させる電極の接続方法。

21. 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材

とを、請求項 2 ～ 4 項のいずれか一項に記載の接着剤を介在させて対向配置し、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電極と第二の電極を電氣的に接続させる電極の接続方法であって、接着剤における第一層の被着対象が第一回路部材であり、第一回路部材は、ガラス基板に接続端子を有する配線が形成

- 5 されたものであり、第二層の被着対象が第二回路部材であり、第二回路部材がポリイミド基板に接続端子を有する配線が形成されたものである電極の接続方法。

22. 一定時間の加熱加圧の開始後、所定間隔経過後に一定時間の光照射を開始し、光照射が行なわれている間は加熱加圧状態が保持されている請求項 20 または 21 に記載の電極の接続方法。

## 補正書の請求の範囲

[2000年6月29日(29.06.00)国際事務局受理:出願当初の請求の範囲6及び7は取り下げられた;出願当初の請求の範囲1-5, 8-17, 20及び21は補正された;他の請求の範囲は変更なし。(3頁)]

1. (補正後) (a) 少なくとも2つ以上のエポキシ基、ビニルエーテル基または環状エーテル化合物を有する化合物から選ばれる光カチオン重合性化合物、(b) オニウム塩、(c) 少なくともアクリロイル基、メタクリロイル基、マレイミド基から選ばれる光ラジカル重合性化合物、(d) 有機過酸化物を本質的に含む回路接続材料。
- 5 2. (補正後) (a) 少なくとも2つ以上のエポキシ基、ビニルエーテル基または環状エーテル化合物を有する化合物から選ばれる光カチオン重合性化合物および(b) オニウム塩から本質的に構成される第一層と、(c) 少なくともアクリロイル基、メ
- 10 タクリロイル基、マレイミド基から選ばれる光ラジカル重合性化合物および(d) 有機過酸化物から本質的に構成される第二層を備えた回路接続材料。
3. (補正後) カップリング剤、無機充填剤、有機充填剤、白色顔料、重合抑制剤、増感剤よりなる群から選択される少なくとも1種の添加剤を含有する請求項1または2に記載の回路接続材料。
- 15 4. (補正後) 第一層及び第二層の層厚みが5~50  $\mu\text{m}$ である請求項2または3に記載の回路接続材料。
5. (補正後) 第一層と第二層の間に、非重合性成分から成る第三層を備えた請求項2乃至4のいずれか1項に記載の回路接続材料。
6. (削除)
- 20 7. (削除)
8. (補正後) (a) 光カチオン重合性化合物の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5~95重量部、(b) オニウム塩の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物100重量部に対して0.05~10重量部、
- 25 (c) 光ラジカル重合性化合物の含有量が、(a) 光カチオン重合性化合物と(c) 光ラジカル重合性化合物の和100重量部に対して5~95重量部、(d) 有機過酸化物の含有量が、(c) 光ラジカル重合性化合物100重量部に対して0.05~10重量部である請求項1~7のいずれか一項に記載の回路接続材料。
9. (補正後) 分子量10000以上の水酸基含有樹脂を含有する請求項1~8のい

ずれか一項に記載の回路接続材料。

10. (補正後) 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がフェノキシ樹脂である請求項9記載の回路接続材料。

5 11. (補正後) 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がカルボキシル基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂であることを特徴とする請求項10記載の回路接続材料。

12. (補正後) 分子量10000以上の水酸基含有樹脂がエポキシ基含有のエラストマーで変性されたフェノキシ樹脂である請求項10記載の回路接続材料。

10 13. (補正後) アクリルゴムを含有する請求項1～12のいずれか一項に記載の回路接続材料。

14. (補正後) 形態がフィルム状である請求項1～13のいずれか一項に記載の回路接続材料。

15. (補正後) 導電性粒子を含む請求項1～14のいずれか一項に記載の回路接続材料。

15 16. (補正後) マトリクス樹脂成分100容量部に対して導電性粒子0.1～30容量部を含み異方導電性を有する請求項1～15のいずれか一項に記載の回路接続材料。

20 17. (補正後) 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とが、第一の電極と第二の電極を対向して配置されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極の間に、請求項1～16のいずれか一項に記載の回路接続材料が介在されており、前記対向配置した第一の電極と第二の電極が電氣的に接続されている電極の接続構造。

18. 第一の回路部材と第二の回路部材の少なくとも一方が透光性である請求項17記載の電極の接続構造。

25 19. 第一の電極を有する第一の回路部材がガラス基板に電極を有する配線が形成されたものであり、第二の電極を有する第二の回路部材がポリイミド基板に電極を有する配線が形成されたものである請求項18記載の電極の接続構造。

20. (補正後) 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とを、請求項1～16項のいずれか一項に記載の回路接続材料を介在させて

対向配置し、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電極と第二の電極を電氣的に接続させる電極の接続方法。

21. (補正後) 第一の電極を有する第一の回路部材と、第二の電極を有する第二の回路部材とを、請求項2～4項のいずれか一項に記載の回路接続材料を介在させて対向配置し、加熱加圧および光照射を併用することによって、前記対向配置した第一の電極と第二の電極を電氣的に接続させる電極の接続方法であって、回路接続材料における第一層の被着対象が第一回路部材であり、第一回路部材は、ガラス基板に接続端子を有する配線が形成されたものであり、第二層の被着対象が第二回路部材であり、第二回路部材がポリイミド基板に接続端子を有する配線が形成されたものである電極の接続方法。
22. 一定時間の加熱加圧の開始後、所定間隔経過後に一定時間の光照射を開始し、光照射が行なわれている間は加熱加圧状態が保持されている請求項20または21に記載の電極の接続方法。

## 条約 19 条に基づく説明書

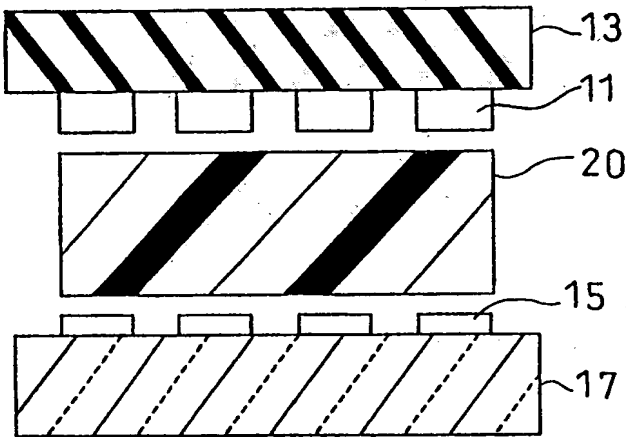
請求の範囲第 1 項は、原請求の範囲 5 項、6 項、7 項の内容を加えて、構成要件をそれぞれ具体的に限定して明確にするとともに、発明の名称を回路接続材料として発明の内容を明確にした。

各引用例は、本発明の構成要件の一部の物質を備えることが開示されているものの、本発明の請求の範囲の全ての構成要件を備えることが開示されていない。

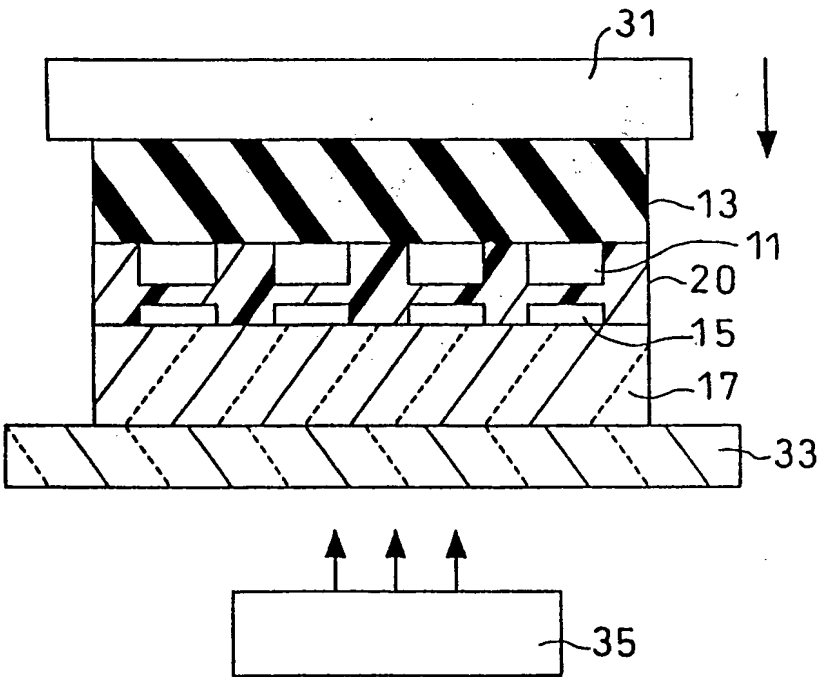
本発明は、回路接続材料を対峙する電極間に介在させて、対峙する電極を加熱加圧しつつ同時に光照射を併用して、相対峙する電極同士を電氣的に接続するものであり、本発明の回路接続材料は、加熱加圧と光照射との併用により加熱温度を小さくでき、従来より低温での接続が可能となる。これにより、回路部材に対する熱的影響を軽減し、かつ接続後における接続部の信頼性に優れるという効果を得たものである。



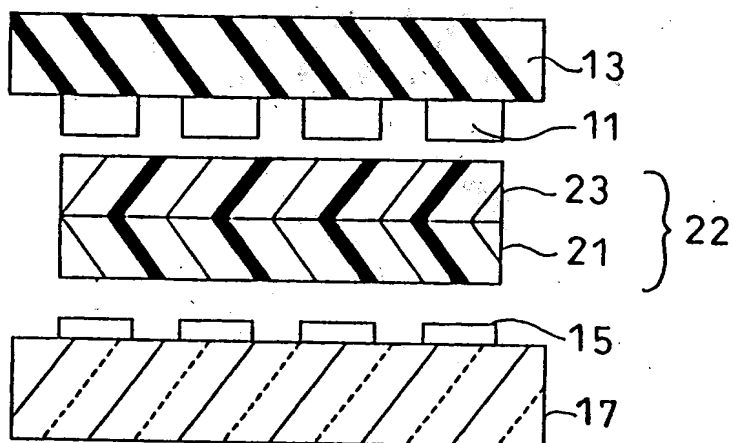
第 1 図



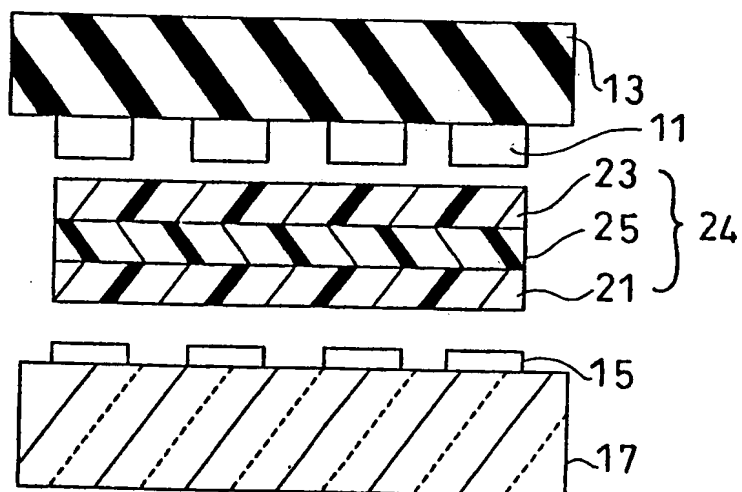
第 2 図



第 3 図



第 4 図



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/00666

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J4/06, C09J163/00, C09J7/02, H01R4/04, H01R11/01,  
H01B1/20, H01L21/60

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08G59/00-C08G59/72,  
H01B1/00-H01B1/24, H01R3/00-H01R13/74,  
H01L21/00-H01L21/98

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CA(STN), WPI/L(QUESTEL), REGISTRY(STN)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 8-248630, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 27 September, 1996 (27.09.96), Claims; Par. No. [0030] (Family: none)	1-22
X	JP, 11-43653, A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 16 February, 1999 (16.02.99), Claims (Family: none)	1-22
X	JP, 11-43654, A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 16 February, 1999 (16.02.99), Claims (family: none)	1-22
X	US, 5532105, A (Hitachi Chemical Company, Ltd.), 02 July, 1996 (02.07.96), Claim 1 to Claim 5, column 11 & JP, 6-148877, A	1-22
X Y	JP, 8-319461, A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 03 December, 1996 (03.12.96), Claims (Family: none)	1, 5-12, 14-22 2-4, 13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to
"A" document defining the general state of the art which is not	understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is	considered novel or cannot be considered to involve an inventive
cited to establish the publication date of another citation or other	step when the document is taken alone
special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	considered to involve an inventive step when the document is
means	combined with one or more other such documents, such
"P" document published prior to the international filing date but later	combination being obvious to a person skilled in the art
than the priority date claimed	"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
18 April, 2000 (18.04.00)

Date of mailing of the international search report  
02 May, 2000 (02.05.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/00666

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 10-324858, A (Sumitomo Seika Chemicals Co., Ltd.), 08 December, 1998 (08.12.98), Claims (family: none)	1,5-8,14-22 2-4,9-13
X Y	EP, 819746, A1 (Sekisui Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 21 January, 1998 (21.01.98), Claims & JP, 10-306140, A	1,5-14 15-16
X Y	GB, 2109798, A (W. R. Grace and Co.), 08 January, 1983 (08.01.83), Claims & JP, 58-125773, A	1,5-9,13-14 15-16
X Y	JP, 64-4682, A (Toshiba Chemical Corporation), 09 January, 1989 (09.01.89), Claims (Family: none)	1,5-8,14 15-16
X Y	JP, 2-58528, A (Mitsui Petrochemical Ind. Ltd.), 27 February, 1990 (27.02.90), Claims (Family; none)	1,5-8,14 15-16
X Y	JP, 2-16179, A (Henkel KGAA), 19 January, 1990 (19.01.90), Claims & EP, 340591, A1	1,5-8,14 15-16
Y	JP, 10-273628, A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 13 October, 1998 (13.10.98), Claims (Family: none)	2-4,17-22

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/00666

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J4/06, C09J163/00, C09J7/02, H01R4/04,  
H01R11/01, H01B1/20, H01L21/60

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl<sup>7</sup> C09J1/00-C09J201/10, C08G59/00-C08G59/72,  
H01B1/00-H01B1/24, H01R3/00-H01R13/74  
H01L21/00-H01L21/98

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN), WPI/L (QUESTEL), REGISTRY (STN)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 8-248630, A (日立化成工業株式会社), 27. 9月. 1996 (27. 09. 96), 特許請求の範囲、【0030】 (ファミリーなし)	1-22
X	JP, 11-43653, A (住友ベークライト株式会社), 16. 2月. 1999 (16. 02. 99), 特許請求の範囲、 (ファミリーなし)	1-22
X	JP, 11-43654, A (住友ベークライト株式会社), 16. 2月. 1999 (16. 02. 99), 特許請求の範囲、 (ファミリーなし)	1-22

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 04. 00

国際調査報告の発送日

02.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA, JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4V

9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 5532105, A (Hitachi Chemical Company, Ltd.), 02. Jul. 1996 (02. 07. 96), Claim 1-Claim 5, Column 11 & JP, 6-148877, A	1-22
X Y	JP, 8-319461, A (住友ベークライト株式会社), 3. 12月. 1996 (03. 12. 96), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 5-12, 14-22 2-4, 13
X Y	JP, 10-324858, A (住友精化株式会社), 8. 12月. 1998 (08. 12. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 5-8, 14-22 2-4, 9-13
X Y	EP, 819746, A1 (SEKISUI KAGAKU KOGYO KABUSIKI KAISYA), 21. Jan. 1998 (21. 01. 98), Claims & JP, 10-306140, A	1, 5-14 15-16
X Y	GB, 2109798, A (W.R. Grace and Co.), 8. Jan. 1983 (08. 01. 83), Claims & JP, 58-125773, A	1, 5-9, 13-14 15-16
X Y	JP, 64-4682, A (東芝ケミカル株式会社), 9. 1月. 1989 (09. 01. 89), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 5-8, 14 15-16
X Y	JP, 2-58528, A (三井石油化学工業株式会社), 27. 2月. 1990 (27. 02. 90), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 5-8, 14 15-16
X Y	JP, 2-16179, A (ベンケル・エマント・イトゲ・セ・ルシャト・アウフ・アクティーン), 19. 1月. 1990 (19. 01. 90), 特許請求の範囲 & EP, 340591, A1	1, 5-8, 14 15-16
Y	JP, 10-273628, A (日立化成工業株式会社), 13. 10月. 1998 (13. 10. 98), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	2-4, 17-22